

L3 ANSWER 1 OF 1 WPINDEX COPYRIGHT 2005 THE THOMSON CORP on STN

AN 1989-343368 [47] WPINDEX Full-text

DNC C1989-152139

TI Device for forming radioisotope - by forming cylindrical vacuum region in front of gas target chamber facing emitted particles and metal foils on ends of region.

DC K08

PA (DAII-N) DAIICHI RADIO ISOTO; (GESL) KERNFORSCHUNGSZENT KARLSRUHE

CYC 1

PI JP 01254900 A 19891011 (198947)* 8<--

ADT JP 01254900 A JP 1988-82396 19880405

PRAI JP 1988-82396 19880405

AN 1989-343368 [47] WPINDEX Full-text

AB JP 01254900 A UPAB: 19930923

In a device for forming a radio isotope by using the nuclear reaction caused by producing a shock to target gas by particles formed via a charged-particle-accelerator, e.g. cyclotron, a cylindrical vacuum region is formed in front of a gas target chamber facing particles emitted, and metal foils permitting transmission of the charged particles are arranged on both ends of the region. ADVANTAGE - Radio isotope formed in the target chamber is not introduced to the cyclotron chamber, and target gas is collected if the metal foil is broken.

0/2

⑫ 公開特許公報(A) 平1-254900

⑤ Int. Cl.⁴

識別記号

庁内整理番号

⑬ 公開 平成1年(1989)10月11日

G 21 G 1/10
G 21 K 5/088805-2G
R-8805-2G

審査請求 未請求 請求項の数 7 (全8頁)

⑭ 発明の名称 ガスターゲット装置およびそれを用いたラジオアイソトープの製造方法

⑯ 特 願 昭63-82396

⑰ 出 願 昭63(1988)4月5日

⑱ 発 明 者 ボルカー・ベヒトル ドイツ連邦共和国ハーゲンバツハ・コンラート・アーデナウアー・リグ 37

⑲ 出 願 人 株式会社第一ラジオアイソトープ研究所 東京都中央区日本橋3丁目10番5号

⑳ 代 理 人 弁理士 矢野 敏雄
最終頁に続く

明 細 書

1 発明の名称

ガスターゲット装置およびそれを用いた
ラジオアイソトープの製造方法

2 特許請求の範囲

1. 荷電粒子加速装置を用いてガス状のターゲットを荷電粒子等で衝撃して、各種の核反応を利用してラジオアイソトープを生産する装置において、ガスターゲットチャンバーの荷電粒子入射方向前面に真空の空間領域が配置され、この真空の空間領域が両端部で荷電粒子を透過させる金属箔を有することを特徴とするガスターゲット装置。

2. 金属箔がガスターゲットチャンバーと真空の空間領域との間でフランジ状に支持され、このフランジが箔と一緒に遠隔操作により交換可能である、請求項1記載の装置。

3. 真空の筒状空間領域の両端にそれぞれアルミニウム、特殊鋼、モリブデン、ニオブまたはタンタルからなる薄い金属箔が備えられて

いる、請求項1記載の装置。

4. 荷電粒子加速装置がサイクロトロン、シンクロトロン、シンクロサイクロトロン、直線加速装置、バン・デ・グラーフ型加速装置である請求項1記載の装置。

5. サイクロトロン、シンクロトロン、シンクロサイクロトロン、直線加速装置、バン・デ・グラーフ型加速装置等の荷電粒子加速装置を用いて、ガス状のターゲットを荷電粒子等で衝撃して、各種の核反応を利用して、ラジオアイソトープを製造する場合に、ガスターゲットチャンバーの荷電粒子入射方向前面に真空の空間領域を設けたガスターゲット装置を用いてラジオアイソトープを製造する方法。

6. ガスターゲットが酸素、窒素、ネオン、アルゴン、塩素、臭素、クリプトン、キセノンの同位体からなる請求項5記載の製造方法。

7. ガスターゲットが ^{124}Xe を99.8%まで

濃縮したキセノンガスであり、核反応として
 $(^{124}\text{Xe} (p, pn) ^{123}\text{Xe} \rightarrow ^{123}\text{I})$ および
 $(^{124}\text{Xe} (p, 2n) ^{123}\text{Cs} \rightarrow ^{123}\text{Xe} \rightarrow ^{123}\text{I})$
 および $(^{124}\text{Xe} (p, 2p) ^{123}\text{I})$ を用いて
 ^{123}I を製造することを特徴とする請求項 5
 記載の製造方法。

3 発明の詳細な説明

産業上の利用分野

サイクロトロン等の荷電粒子加速装置を用いて製造されるラジオアイソトープ例えば ^{123}I 、 $^{81\text{m}}\text{Kr}$ 、 ^{201}Tl 、 ^{67}Ga 等は種々の化学形および化合物との標識体として医療の分野、特に各種の腫瘍や臓器のイメージング剤としての診断的应用や腫瘍の治療剤としての利用に提供されており、効率良く、安全に目的とするラジオアイソトープを製造する方法の研究開発は、医療上もきわめて重要な事項の一つとなってきている。

本発明は荷電粒子加速装置を用いてガス状のターゲットを荷電粒子等で衝撃してラジオアイ

ソトープを製造する時に用いるガスターゲット装置およびそれを用いてラジオアイソトープを製造する方法に関するものである。

従来の技術

荷電粒子加速装置を用いてガスターゲットを荷電粒子で衝撃してラジオアイソトープを製造する時に用いられるガスターゲットチェンバーの一端に設けられた荷電粒子入射窓は衝撃する荷電粒子の照射エネルギーを有効に活用するために金属箔製の非常に薄い膜例えば 0.5 mm のアルミニウム膜やタンタル製の膜が用いられるのが一般的である。(Int. J. of Applied Radiation and Isotopes Vol. 32 pp465~475, 1981)

発明が解決しようとする課題

加速された荷電粒子が入射するガスターゲットチェンバーの一端に設けられた窓は前記のように非常に薄くまたガスターゲットチェンバー内の気圧は荷電粒子の衝撃効率を良くする目的で 7~15 気圧程度に加圧されている。

さらに荷電粒子の衝撃による窓の放射線損傷も考慮されねばならない。

このような状況下でガスターゲットが荷電粒子で衝撃されガスターゲットチェンバー内に多量のラジオアイソトープが生産される。

例えば、99.8%に濃縮した ^{124}Xe ガスターゲットを 30 MeV の陽子ビームで 6 時間衝撃して ^{123}I を製造する場合、衝撃直後において、表 1 に示すような多量のラジオアイソトープがガスターゲットチェンバー内に生成する。

表 1. 核反応とラジオアイソトープ生成量

核 反 応	生 成 量 (mCi)
$^{124}\text{Xe} (p, 2n) ^{123}\text{Cs}$	2 2 0 0 0
$^{124}\text{Xe} (p, pn) ^{123}\text{Xe}$	3 5 0 0 0
$^{124}\text{Xe} (p, p2n) ^{122}\text{Xe}$	1 2 0 0
$^{124}\text{Xe} (p, \alpha) ^{121}\text{I}$	6 5 0

(注) ^{123}Cs は半減期 5.9 分で ^{123}Xe に崩壊する。
 また、 ^{123}Xe は半減期 2.08 時間で ^{123}I に崩壊する。したがって、照射直後の ^{123}I の生成量は 6000 mCi である。

ここで特に問題となって来る点はガスターゲットチェンバーの荷電粒子入射方向の一端に設けられた金属箔製の非常に薄い入射窓膜およびガスターゲットチェンバー内が 7~15 気圧程度に加圧されていることにある。

即ち荷電粒子でガスターゲットを衝撃してラジオアイソトープを製造している最中に前述の非常に薄い金属箔製の膜が破損した場合、ターゲットチェンバー内に生成している多量のラジオアイソトープがサイクロトロン室内に放出され放射性物質による環境の汚染事故が発生すると共に非常に高価な濃縮ターゲットガスが回収不可能となり失われる。例えば ^{124}Xe 濃縮 (99.8%) ターゲットを用いて ^{123}I を製造する時に用いるキセノンガス量は 250 cc でありその価格は 1250 万円と非常に高価なものである。

課題を解決するための手段

このような放射性物質による環境の汚染事故および非常に高価な濃縮ガスターゲットの損失

を未然に防止する方策について鋭意研究を重ねた結果、本発明者らはターゲットチェンバーの荷電粒子入射方向の前面に、衝撃中の安全性を確保するために、両端に25ミクロンと50ミクロンの金属箔の薄膜を有する280mlの容積からなる真空の筒状空間領域を設けたガスターゲット装置を用いることにより従来から問題となっていた点を解決し、良好な効果が得られることを見出すに至った。

金属箔としては、モリブデン、タンタル、アルミニウム、ニオブ等を使用することができる。

また本願発明のガスターゲット装置は、前述した ^{124}Xe 濃度ガスターゲットを用いた ^{123}I の製造以外に、表2に示すように多種のガスターゲットを用いて、種々のラジオアイソトープを製造するために、応用することも可能である。

^{18}F	$^{18}\text{O}(\alpha, d)^{18}\text{F}$ $^{20}\text{Ne}(d, \alpha)^{18}\text{F}$ $^{18}\text{O}(p, n)^{18}\text{F}$ $^{20}\text{Ne}(^3\text{He}, \alpha n)^{18}\text{Ne}$ $^{18}\text{Ne} \rightarrow ^{18}\text{F}$	3~20 3~15 3~15 1.8~3.2
^{38}S	$^{40}\text{Ar}(p, 3p)^{38}\text{S}$ $^{40}\text{Ar}(7, 2p)^{38}\text{S}$	30~50 60~85
^{34}mCl	$^{35}\text{Cl}(p, pn)^{34}\text{mCl}$	10~45
^{38}K	$^{40}\text{Ar}(p, 3n)^{38}\text{K}$ $^{35}\text{Cl}(\alpha, n)^{38}\text{K}$ $^{37}\text{Cl}(^3\text{He}, 2n)^{38}\text{K}$	30~32 4~30 7~20
^{43}K	$^{40}\text{Ar}(\alpha, p)^{43}\text{K}$	12~35

表2 ガスターゲットを用いたラジオアイソトープの製造例

ラジオアイソトープ	核反応	衝撃粒子のエネルギー(MeV)
^{11}C	$^{14}\text{N}(p, \alpha)^{11}\text{C}$	4~15
	$^{12}\text{C}(p, pn)^{11}\text{C}$	10~45
	$^{12}\text{C}(^3\text{He}, \alpha)^{11}\text{C}$	3~30
^{13}N	$^{12}\text{C}(d, n)^{13}\text{N}$	3~15
	$^{13}\text{C}(p, n)^{13}\text{N}$	3~12
	$^{18}\text{O}(p, \alpha)^{13}\text{N}$	5~20
^{15}O	$^{14}\text{N}(d, n)^{15}\text{O}$	3~6
	$^{12}\text{C}(\alpha, n)^{15}\text{O}$	5~30
^{18}F	$^{16}\text{O}(^3\text{He}, p)^{18}\text{F}$	3~40

^{79}Kr	$^{78}\text{Br}(p, n)^{79}\text{Kr}$	2~20
^{81}Rb	$^{82,83}\text{Kr}(p, xn)^{81}\text{Rb}$	16~32
	$\text{Na}^{81}\text{Kr}(p, xn)^{81}\text{Rb}$	10~45
	$^{82}\text{Kr}(d, 3n)^{81}\text{Rb}$	10~45
^{82}Sr	$^{82}\text{Kr}(^3\text{He}, 3n)^{82}\text{Sr}$	32~70
	$^{80}\text{Kr}(\alpha, 2n)^{82}\text{Sr}$	3~30

以下に実施例をあげて本発明をさらに具体的に説明する。

実施例

第1図に本発明のガスターゲット装置の断面図を示す。

図1において内部に冷却管(16, 17)、ガスターゲット室(2)、ガスターゲット室内洗浄用管(15)、ヒーター(19a, 19b)及びターゲットガス入出管(18)を有するニッケルでメッキされたアルミニウム製ターゲットチェンバー本体(1)のビーム(14)入射方向前面にフォイルフランジ(11)で固定した厚さ25ミクロンのモリブデン製金属箔(12)を設け、そのビーム入射後方にもフォイルフランジ(3)で固定した厚さ50ミクロンのモリブデン製金属箔(4)を設けて、衝撃中の安全性を確保するための真空の筒状空間領域(10a, 10b, 10c)を形成するように安全チェンバー本体(5a, 5b)を接続する。(第1図)

次に、第2図の ^{123}I 製造用ガスターゲット

バルブ(43)を開け、液体チッ素で ^{124}Xe ガス凝縮容器(42)を冷却する。その温度が -120°C に達した時、バルブ(21, 28)、可変型弁(32, 37)及びバルブ(41)を開け、 ^{124}Xe 容器(24)から ^{124}Xe 凝縮容器(42)に ^{124}Xe ガスを移動する。 ^{124}Xe ガスが完全に ^{124}Xe 凝縮容器(42)に移動した後、上記バルブを閉め ^{124}Xe ガス凝縮器ヒーター(60)を加熱して ^{124}Xe ガスを完全にターゲットチェンバー本体(47)に移動する。ターゲットチェンバー本体(47)に移された ^{124}Xe ガスの容量はターゲットチェンバーに設けられている圧力計(48)及び温度計(49)により正確に測定し、 ^{124}Xe ガスの存在を確認した後約40マイクロアンペアで約30 MeVの陽子ビーム(57)で6時間前後照射する。

(3) 照射後の ^{124}Xe ガスの移動及び ^{123}I の回収

照射終了後ターゲットチェンバー本体(47)内の ^{124}Xe および ^{124}Xe と上記陽子ビームとの核反応で生成した放射性同位元素(^{123}Xe 、

装置の全体的な構成を示すフローチャート図(第2図)に従って以下に実際の ^{123}I の製造例および安全チェンバー本体の機能について説明する。

(1) ^{124}Xe ガスターゲット照射準備

照射前に第2図に示されているバルブ(21, 46)を閉め、ポンプ(31)を稼働させバルブ(29, 28)、可変型弁(32, 37)及びバルブ(41, 51)を開き、ターゲットヒーター(58)、 ^{124}Xe ガス凝縮容器ヒーター(60)によってターゲットチェンバー本体(47)及び ^{124}Xe ガス凝縮容器(42)、安全チェンバー(54)及びそれらに接続されている管内を上記ヒーターによって加熱しながら洗浄する。上記工程を5~6時間行い終了時に上記バルブを閉め、ヒーター、ポンプを停止する。

^{123}I 製造時は手動バルブ(23)は常時開き、手動バルブ(20)は常時閉じておく。

(2) 照射のための ^{124}Xe ガス移動及び照射

^{123}I 等)は照射終了時から6時間前後そのまま上記ターゲットチェンバー本体(47)内で保持する。その後バルブ(25)を開け液体チッ素で ^{124}Xe 容器を冷却し、 -120°C にした後、バルブ(41)、可変型弁(37, 32)及びバルブ(28, 21)を開け ^{124}Xe ガスを ^{124}Xe 容器(24)に戻す。完全に ^{124}Xe ガスが上記 ^{124}Xe 容器(24)に戻った後バルブ(21, 28)可変型弁(32, 37)バルブ(41)を閉める。

その後バルブ(25)を閉め ^{124}Xe 容器ヒーター(27)で ^{124}Xe 容器(24)を加熱して室温に戻す。上記の工程が完全に終了した後、バルブ(46)を開け、ターゲットチェンバー本体(47)内に生成した ^{123}I を回収するため蒸留水約40 ccを三方コック(44)を通してターゲットチェンバー本体(47)内に注入する。その後バルブ(46)を、開放のまま、ターゲットヒーター(58)によって約 90°C まで加熱し約10分間そのままの状態で放置す

る。上記工程が完全に終了した後バルブ(41)、可変型弁(38)、バルブ(39)を開けターゲットチェンバー本体内の ^{123}I 含有水を三方コック(44)を通して別室の ^{123}I 回収用ホットセル室(59)に送るために、ヘリウムガス(40)で加圧する。ターゲットチェンバー本体(47)内の上記 ^{123}I 含有水を完全にホットセル室(59)に移動した後、ターゲットヒーター(58)をとめ、上記バルブ(46, 41)、可変型弁(38)、バルブ(39)を閉める。ホットセル室に移動された ^{123}I 含有水は、イオン交換樹脂等により精製し、その核種純度がゲルマニウム検出器を用いたガンマ線スペクトロメトリーにより測定される。通常上記の照射条件で製造される ^{123}I の放射能量は、照射終了時から ^{123}I を回収するまでの放置時間によっても異なるが最適時間で ^{123}I を回収した場合、例えば6時間照射した後ターゲットチェンバー本体(47)で6時間放置した時に回収される ^{123}I の収量は、1.2キュリ

は変化がないので照射を中止して、フォイルフランジ(55)をはずして、25ミクロンモリブデン金属箔を取り替える。また、ターゲットチェンバー本体側の50ミクロンモリブデン金属箔が破損した時は、圧力計(50)が上がると同時に、圧力計(48)は下がるので、この時は照射を中止すると共に、液体チッ素用自動開閉バルブ(25)を開き ^{124}Xe 容器(24)を冷却すると同時に、バルブ(51, 37, 32, 28, 21)を開き、ターゲットチェンバー本体(47)内に生成したラジオアイソトープおよび ^{124}Xe ガスを ^{124}Xe 容器(24)に回収する。

以上のように、本願発明の安全チェンバー本体(54)は、照射中におけるモリブデン金属箔の破損事故に対して、安全性を確保するように機能するものである。

発明の効果

ある程度の放射性同位元素を製造するには、高含量の同位元素に富んだガスを高い圧力でエ

ーである。

(4) 次回 ^{124}Xe ターゲット照射のための準備

今回の照射のため、ターゲットチェンバー本体(47)内を完全に乾燥する必要があり、最初に、ポンプ(34)を稼働させ、可変型弁(33, 37)およびバルブ(41)を開け、荒引きし、次に可変型弁(33)を閉め、ポンプ(34)をとめる。次にポンプ(31)を稼働させ、可変型弁(32, 37)バルブ(29)を開き、さらにターゲットヒーター(58)で加熱しながら完全にターゲットチェンバー本体(47)内部を乾燥する。その後上記バルブ、ヒーター、ポンプをとめる。

(5) 安全チェンバー本体の機能

照射中は、安全チェンバー本体(54)内の筒状空間領域は、真空状態が保たれ、圧力計(50)で監視されている。ビーム側の25ミクロンモリブデン金属箔(56)が破損した時は圧力計(50)の圧力が上りターゲットチェンバー本体(47)内の圧力計(48)の圧力に

エネルギーに富んだイオンで照射することが必要である。できるだけ高い生産効率を得るには、できるだけ大きいイオンビームの流れの強さを適用する。10~40 MeV/Nの当該エネルギー範囲内で固体中の荷電粒子はそのエネルギーを急速に消失するので、前記の所謂ガスタargetに比較的薄い入射窓を備えさせることは、不可避のことである。この入射窓は、次のものに影響を及ぼす：圧力、温度およびビーム負荷。実験による経験から、亀裂または僅かな非気密性が生じることは、決して完全には排除することができないことが明らかである。

この種のガスタargetをビーム制御系および/または粒子加速装置の真空系と直接に結合した場合には、入射窓の欠陥の点で次のことが不利となる：

- 高価なガスの損失、
- ビーム制御系および/または加速装置の汚染(照射されたガスは、一般に既に短い照射時間後に高い放射性であること)、

ー生産中止。

本発明の明細書に記載された“真空中間室”は、最少であってもガス量の損失を阻止し、汚染を阻止し、その上ガスターゲットチャンバーに対する入射格の気密性に極めて敏感な測定方法を提供する。このターゲットチャンバーによって入射格を適時に交換することができ、このことは、実地において生産の安全性を本質的に向上させることに貢献する。

すなわち、本発明ではガスターゲットチェンバーの荷電粒子入射方向の前面に衝撃中の安全性を確保するための真空の筒状空間領域を設けることにより衝撃中にガスターゲットチェンバーの一端に設けられた金属箔製の薄膜が破損してもターゲットチェンバー内に生成しているラジオアイソトープがサイクロトロン室内に放出されることなくまた高価なターゲットガスも損失することなく回収することが可能となった。即ち本発明は照射エネルギーの損失がほとんどなく、入射窓膜の破損による放射性物質による

(出口)、18…ターゲットガス入出管、19 a, 19 b…ヒーター、20…手動バルブ、21…開閉自動バルブ、22…圧力計、23…開閉自動バルブ、24… ^{124}Xe 容器、25…液体チッ素用自動開閉バルブ、26…液体チッ素容器、27… ^{124}Xe 容器ヒーター、28, 29…開閉自動バルブ、30…ヒーター、31…ポンプ、32, 33…可変型弁、34…ポンプ、35…排気回収溜、36…圧力計、37, 38…可変型弁、39…開閉自動弁、40…ヘリウムガス、41…開閉自動弁、42… ^{124}Xe ガス凝縮容器、43…液体チッ素弁、44…三方コック、45…ターゲット内部洗浄水、46…開閉自動弁、47…ターゲットチェンバー本体、48…圧力計、49…温度計、50…圧力計、51…開閉自動弁、52…フォイルフランジ、53…50ミクロンモリブデン金属箔、54…安全チェンバー本体、55…フォイルフランジ、56…25ミクロンモリブデン金属箔、57…ビーム、58…ターゲットヒーター、59…ホ

環境への汚染事故及び高価な濃縮ターゲットガスの損失を未然に防止することを目的としたラジオアイソトープ製造用のガスターゲット装置を提供するものである。

4 図面の簡単な説明

第1図は、ガスターゲット装置の断面図を示す。

第2図は ^{123}I 製造用ガスターゲット装置の全体的な構成を示すフローチャート図を示す。

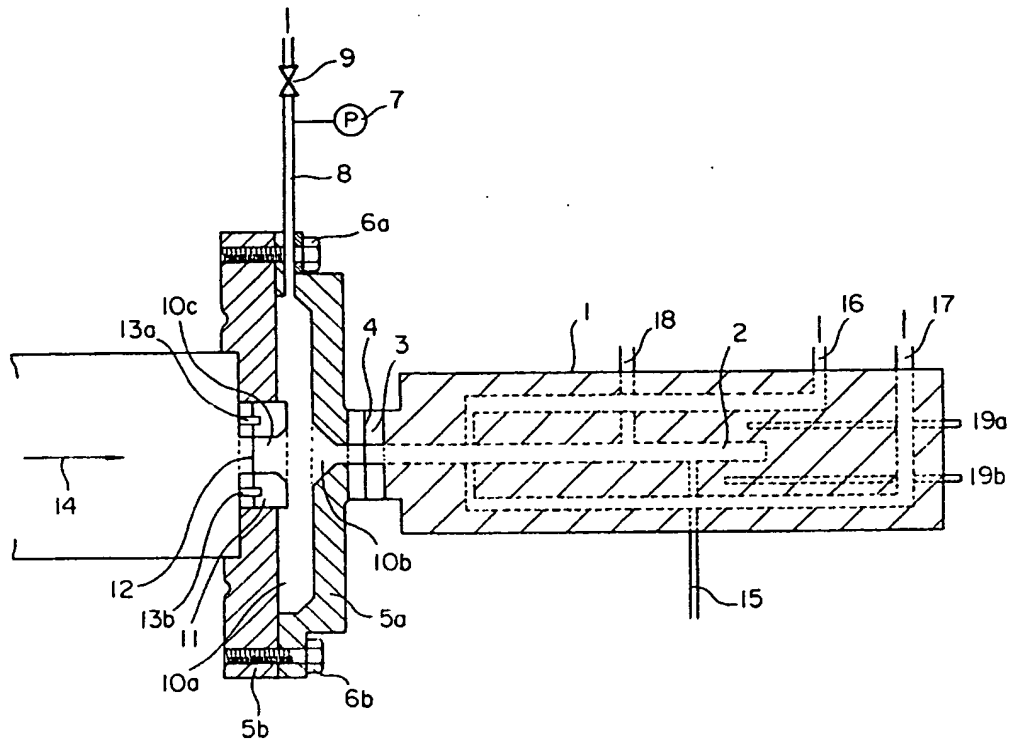
1…ターゲットチェンバー本体、2…ガスターゲット室、3…フォイルフランジ、4…50ミクロンモリブデン製金属箔、5 a, 5 b…安全チェンバー本体、6 a, 6 b…ボルト、7…圧力計、8…ガス回収管、9…開閉弁、10 a, 10 b, 10 c…筒状空間領域、11…フォイルフランジ、12…25ミクロンモリブデン製金属箔、13 a, 13 b…ボルト、14…ビーム、15…ガスターゲット室内洗浄用管、16…ターゲットチェンバー本体冷却水管(入口)、17…ターゲットチェンバー本体冷却水管

ットセル室、60… ^{124}Xe ガス凝縮器ヒーター。

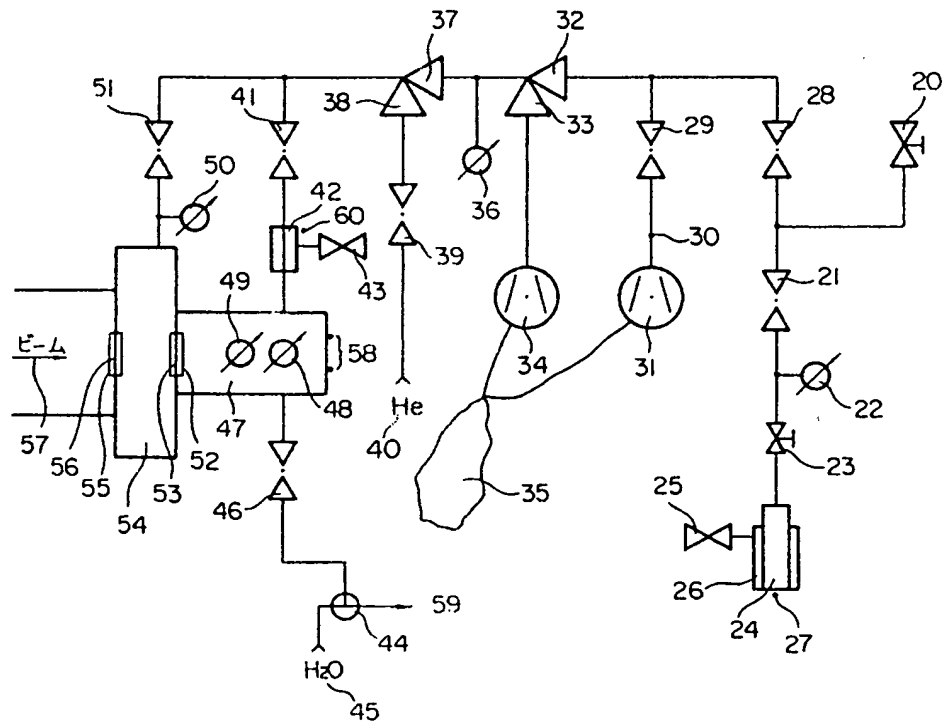
代理人 弁理士 矢野敏雄



第1図



第2図



第 1 頁の続き

⑫発 明 者	ヘルマン・シュバイケ ルト	ドイツ連邦共和国カールスルーエ・コールベルガー・ス トリート 17
⑬発 明 者	井 上 照 夫	東京都八王子市散田町 2-51-11
⑭発 明 者	山 本 卓 男	千葉県山武郡成東町成東2810-21
⑮出 願 人	ケルンフォルシュング スツエントルム・カー ルスルーエ・ゲゼルシ ャフト・ミット・ベシ ユレンクテル・ハフツ ング	ドイツ連邦共和国カールスルーエ 1・ヴェーバーシュトラ ーセ 5